

マイクロ ARPES 装置の改良と反強磁性トポロジカル絶縁体 GdBi のディラック電子状態

本間飛鳥¹, 相馬清吾^{2,3}, 佐藤宇史^{1,2,3}¹ 東北大学 大学院理学研究科, ² 東北大学 材料科学高等研究所, ³ 東北大学 CSIS

Upgrade of micro-ARPES system and Dirac electronic states of antiferromagnetic topological insulator GdBi

Asuka HONMA¹, Seigo SOUMA^{2,3}, Takafumi SATO^{1,2,3}¹ Graduate School of Science, Tohoku University, ² WPI-AIMR, Tohoku University, ³ CSIS, Tohoku University

Abstract

トポロジカル絶縁体は表面にディラック電子と呼ばれる質量ゼロの金属電子状態を有する物質である。希土類ビスマス RBi は反強磁性秩序を示すトポロジカル絶縁体として知られている。近年, NdBi に対するマイクロ ARPES 測定によって反強磁性相で質量ゼロ / 有限質量のディラック電子が共存することが明らかとなり, 反強磁性トポロジカル絶縁体相が新たなトポロジカル電子相として実証された。本研究では NdBi と異なる磁気構造を示す GdBi に対してマイクロ ARPES 測定を行うことで, 磁性相でディラック電子を保護する対称性を明らかにした。

また Photon Factory BL-28A のマイクロ ARPES 装置において, T 型課題にかかる装置改良を行った。ここでは空間走査マッピング測定における位置制御精度を向上し, さらに高速なマッピング法である on-the-fly 測定を実現した。

1. はじめに

トポロジカル絶縁体 (TI) は, バルクは絶縁体でありながら, 表面に時間反転対称性 (θ) に保護されたディラック電子状態と呼ばれる金属状態を有する物質である。このディラック電子は質量ゼロとなり, 低散逸でエネルギーを輸送できることから省電力デバイスやスピントロニクスへの応用に向けて注目を集めている。近年では, TI に磁性を導入して時間反転対称性を破り, ディラック電子のエネルギー分散にギャップを形成する, すなわち質量を持たせる試みが行われている。本研究で着目した反強磁性トポロジカル絶縁体 (AF TI) では, 正味の磁化はゼロであるにもかかわらず, ミクロな時間反転対称性の破れに起因した有限質量ディラック電子の出現が予想されている [1]。しかし, 興味深いことに, 並進対称性 T_D と θ を組み合わせた複合対称性 $S = \theta T_D$ が有効的な時間反転対称性として働き, 反強磁性 (AF) 相でも質量ゼロのディラック電子状態を安定化できると提案されている。言い換えると, Fig. 1a のような AF 磁気構造 (A-type 反強磁性と呼ばれる) を考えたとき, 上面の (001) 面では強磁性的に磁気モーメントが秩序するために, ディラック電子が表面で有効的な磁化を感じて質量を獲得する。一方, 側面の (100) 面や (010) 面では正味の磁化はゼロであるため, ディラック電子は質量ゼロのままであるとも解釈できる。このように, AF TI は有限質量 / 質量ゼロのディラック電子が同じ系に共存しており, その共存の様態が磁気秩序で変化するという他のトポロジカル物質にはない性質を持つ。

AF TI におけるディラック電子の特異な質量獲得機構に着目して, 多くの研究が特に代表物質 MnBi_2Te_4 (MBT) に

対して行われており, 量子異常ホール効果の観測や角度分解光電子分光 (ARPES) によるディラック電子の直接観測が行われている [2-4]。しかし, 層状物質である MBT では側面の清浄表面を得るのが難しく, 複合対称性 $S = \theta T_D$ で保護された質量ゼロディラック電子の観測例はない。そこで我々は, この課題を解決するために NdBi に着目し, マイクロ ARPES 測定を行った [5]。NdBi は立方晶であり, 側面の測定も可能であるが, 実験的な制約のため, 実際には同一の劈開面上に自発的に成長した AF ドメイン構造を微小スポットの励起光を用いることで分離測定した。立方晶という高い対称性のため, 複数の AF ドメインの形成エネルギーが等価であり, 3 種のドメインが均等に現れるためである。観測の結果, ドメインに応じてエネルギー分散にギャップを形成するディラック電子状態の測定に成功し, NdBi で AF TI 相が実現していることを実証した。さらに, 電子状態の対称性を詳細に解析することで, 複合対

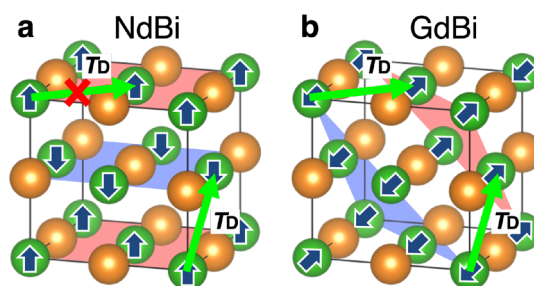


Figure 1 Crystal structure of (a) NdBi and (b) GdBi with magnetic moment orientations. The green arrow indicates the T_D vector.

称性 $S = \theta T_D$ がディラック電子質量の獲得に重要な役割を果たしていることが示唆された。そこで本研究では、ディラック電子の質量獲得の起源を対称性の観点から明らかにすべく、NdBi と同じ結晶構造を持つが、AF 構造が異なる GdBi に着目した。GdBi は A-type 磁気構造を示すが、強磁性層は $[111]$ 方向に積層する [Fig. 1b]。すなわち、AF 相での GdBi のディラック電子質量についての知見を得ることで、AF 秩序がディラック電子状態に与える影響をより精密に議論できる。

本研究では、Photon Factory BL-28A のマイクロ ARPES 装置 [6] を利用することで、GdBi の AF ドメインを分離し、それぞれでディラック電子状態を測定した。ドメイン分離の方法と観測されたディラック電子状態の起源について議論する [7]。また最後に、最近行った BL-28A の装置改良についても報告する。

2. 実験方法

GdBi 単結晶は Bridgman 法を用いて合成した。Gd (3N) と Bi (6N) を 1:1 の比でタングステン坩堝に真空封入し、2100℃まで加熱し 2 時間維持した。その後坩堝を電熱線の中心から 1 mm/h の速さで 25 mm 引き下げ、温度勾配が最大となる位置で止めた。続いて温度を 2℃/h で 1800℃まで徐々に下げ、100℃/h で室温まで下げた。得られた単結晶は X 線回折と磁化率測定で特性評価し、 $T_N = 27.5$ K が得られた。

真空紫外 (VUV)-ARPES 測定は BL-28A で行い、励起光は 60–200 eV を用いた。(001) 清浄表面は 1×10^{-10} Torr 以下の真空中で棒劈開することで得た。物質中の電子バンド分散を直接観測することができる ARPES の特徴を活かしてディラック電子状態の直接観測を行った。

3. ARPES 測定結果

3-1. 常磁性相におけるトポロジカル電子状態

VUV を用いた光電子分光における表面感受性を用いて、表面に局在したディラック電子の観測を行った。ここで、光電子の表面からのプローブ深さは ARPES 測定における面直方向の運動量 k_z の不確定性 (ブロードニング) として現れる。 k_z -ブロードニングが顕著になると、観測される電子状態は k_z 方向に射影され、さまざまな k_z に対応する電子状態が同時に観測される。Figure 2a に fcc ブリルアンゾーンと GdBi のフェルミ面の模式図を示す。 k_z -ブロードニングはフェルミ面に対しても同様に考慮でき、 k_z 方向に射影された正方形の表面ブリルアンゾーンが観測される。Figure 2b に $h\nu = 90$ eV, $T = 40$ K (常磁性相) で得られた $\Gamma\bar{M}$ 方向のバンド分散を示す。 $k_z = 0$ に由来する h1, h2, e1 バンドに加え、 $k_z = \pi$ に由来する e3 バンドがフェルミ準位 (E_F) 近傍の電子状態を構成している。また、 Γ 点近傍で急峻な分散を示しているのがディラック電子バンド (D1) である。ディラック電子の特徴である線形でギャップレスな分散が明瞭に観測されている。この系ではディラック電子状態は 3 つ存在しており、残る 2 つ (D2, D3)

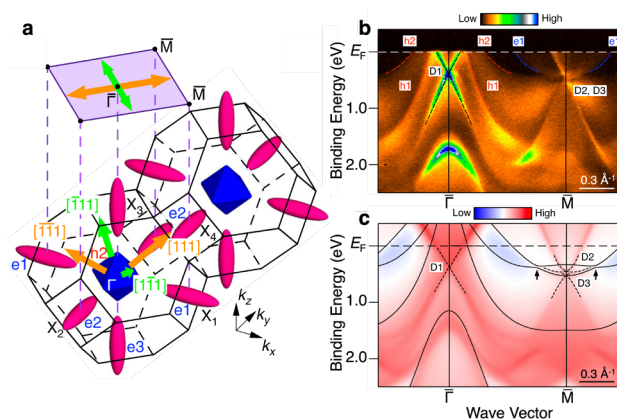


Figure 2 (a) Bulk fcc Brillouin zone together with the bulk Fermi surface. The purple rectangle indicates the surface Brillouin zone projected onto the (001) surface. Orange and green arrows indicate the AF ordering vectors in the bulk Brillouin zone and projected surface Brillouin zone, respectively. (b) Plot of ARPES intensity as a function of E_B and wave vector along the $\Gamma\bar{M}$ cut measured in the paramagnetic phase ($T = 40$ K) with $h\nu = 90$ eV. Red, blue, and black dashed curves are a guide for the eyes to trace the Bi 6p (h1 and h2), Gd 5d (e1), and surface Dirac-cone (D1) bands, respectively. (c) Calculated surface spectral weight along the $\Gamma\bar{M}$ cut projected onto the (001) plane, obtained with the Green's function method for a semi-infinite slab of GdBi in the nonmagnetic phase. Black dashed curves trace the band dispersion of the D1, D2, and D3 SSs. Black solid curves are the calculated bulk-band dispersion at $k_z = 0$ ($\Gamma\bar{X}$ cut in bulk Brillouin zone).

は $\bar{M}$ 点の h1 バンドと e1 バンドの反転領域に存在するが、GdBi ではバンド反転が小さいために明瞭に観測できていない。しかし、Fig. 2c に示すバンド分散のシミュレーション結果では、D1 バンドを含め、D2, D3 バンドが再現されている。以上の結果から、GdBi も他の RBi と同様に常磁性相でトポロジカル絶縁体であると結論した。

3-2. 反強磁性相におけるディラック電子状態

常磁性相で観測されたディラック電子状態が、AF 秩序によってどのように変調を受けるのかを明らかにするためにマイクロ ARPES 測定を行った。GdBi では A-type の AF 秩序が $[111]$ 方向に成長するため [Fig. 1b], AF ドメインが合計 4 つ存在する ($[111]$, $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$, $[\bar{1}11]$, $[1\bar{1}\bar{1}]$ の 4 種; Fig. 2a に矢印で示した方向)。しかし、ARPES で観測可能な (001) 面の表面ブリルアンゾーンを考えると、例えば $[111]$ と $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$ のドメインは区別がつかない。すなわち、表面ブリルアンゾーンに射影された電子状態では 2 種類の AF ドメイン構造が存在すると予想される。マイクロ集光を用いてこれらのドメインを分離できれば、表面ブリルアンゾーンへ射影された電子状態にドメインによる差異が観測されるはずである。比較のため、常磁性相 ($T = 40$ K), $h\nu = 105$ eV で観測されたフェルミ面を Fig. 3a に示す。 k_z -ブロードニングの影響により、 $\bar{M}$ 点には k_z の異なる 2 種のフェルミ面 (e1 と e2) が重なり、手裏剣状のフェルミ面が観測されている。

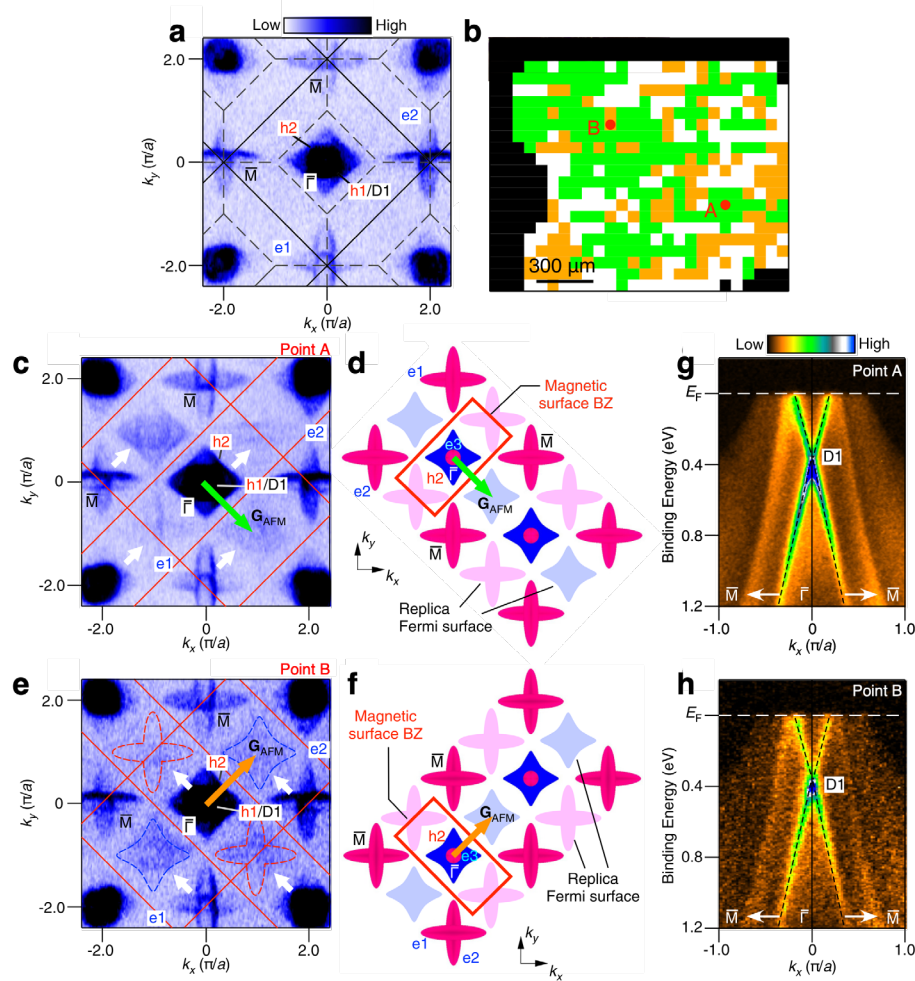


Figure 3 (a) ARPES-intensity mapping at E_F for GdBi plotted as a function of k_x and k_y at $T = 40$ K obtained with $h\nu = 105$ eV. Solid lines indicate the surface Brillouin zone boundary, whereas the dashed lines indicate the cross section of both $k_z = 0$ and π planes of the bulk fcc Brillouin zone boundary. (b) Distribution of AF domains visualized by scanning ARPES with a 26×22 mesh. The pixel size is $50 \times 50 \mu\text{m}^2$. Regions shown with orange and green colors correspond to points A and B, where the AF ordering vector points to the lower right and upper right directions, respectively. The white region represents the area where the domain identification was difficult, while the black region has no signal from the sample. The intensity at each point was obtained by full integration of the ARPES intensity. (c) Same as (a) but obtained at $T = 6$ K (AF phase) for point A. G_{AF} (green arrow) is the AF ordering vector projected onto the surface. White arrows indicate the replica of the Fermi surfaces, and red rectangles represent the magnetic surface Brillouin zone. (d) Schematics of band folding in the surface Brillouin zone, together with the folded Fermi surfaces for point A. The red rectangle represents the magnetic surface Brillouin zone. (e), (f) Same as (c) and (d), respectively, but for point B. (g), (h) Near- E_F ARPES-intensity plots around the $\bar{\Gamma}$ point obtained at $T = 6$ K along the k_x cut for points A and B, respectively.

AF相で観測された2種類のフェルミ面をFigs. 3c,eに示す。測定は $h\nu = 105$ eV, $T = 6$ K ($T_N = 27.5$ K)で行った。ここで、[111]方向に成長するAFドメインによってユニットセルは2倍になる。そのため波数空間ではその方向にバンド分散の折り返しが生じ、Figs. 3c,eに白矢印で示したように、常磁性相では空白だった波数領域(k_x, k_y) = $(\pm\pi/a, \pm\pi/a)$ に微弱な折り返し強度が出現している。これらはFigs. 3d,fに概略図で示すように、 $\bar{\Gamma}$ 点や $\bar{M}$ 点の周りのフェルミ面がAF秩序によって折り返され、ストライプ状に整列しているためであると解釈できる。ここでGdBiもNdBiと同じく立方晶であるため、これら複数のAFドメインが単一の劈開表面に共存する。そのため微小スポットを用いて分離した結果をFig. 3bに示す。これは試料上の各点においてバンド分散を観測し、AFドメインの分布を

可視化した図である。Figures. 3c,eはそれぞれFig. 3b中の点A,Bで観測された電子状態である。

各AFドメインにおいてディラック電子状態を観測した結果をFigs. 3g,hに示す。測定は $h\nu = 105$ eV, $T = 6$ Kで行った。明瞭に観測されていた $\bar{\Gamma}$ 点近傍のD1バンドのみを示す。測定の結果、点A,BいずれのAFドメインにおいても線形でギャップレス（質量ゼロ）なディラック電子状態が観測された。つまり、GdBiは(001)面に表面ディラック電子状態を保護する対称性を有することを意味する。

3-3. 複合対称性Sに保護されたディラック電子状態

GdBiで観測されたギャップレスなディラック電子はAFドメインによらず存在していた。直接比較のためにNdBiで観測されていた結果と今回GdBiで観測された結果を

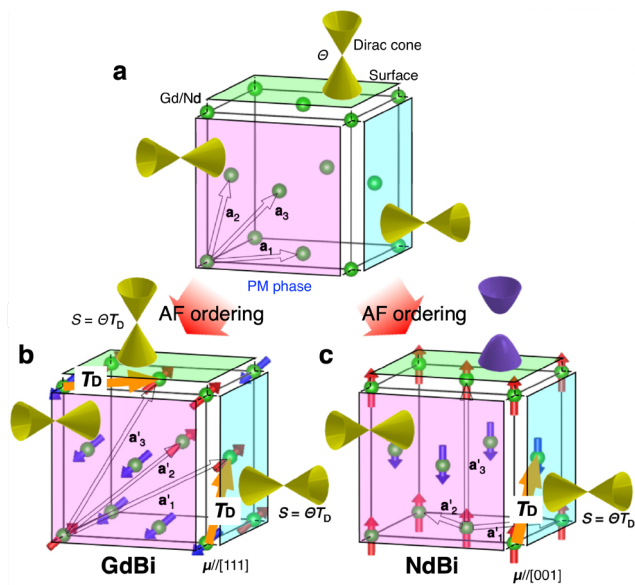


Figure 4 (a) Schematic of surface Dirac cones in the paramagnetic phase for both NdBi and GdBi, which are attributed to the topological insulator phase with surface-independent massless Dirac cones. (b), (c) Same as (a) but for the GdBi and type-I (NdBi) AF phases, respectively. Dirac cones are protected by the combined symmetry S , except for the ferromagnetically aligned surface for the NdBi case. The unit lattice vectors a_i ($i = 1-3$) that take into account the magnetic structure for the AF case are shown by open black arrows. T_D translational symmetries are shown by the orange color in (b) and (c).

Fig. 4 にまとめる。磁気転移に伴い、NdBi は [001] 方向に、GdBi は [111] 方向に A-type 秩序する。この時、上面の (001) 面を見ると、GdBi では表面上に逆向きの磁気モーメントを持つ Gd 磁性イオンがいるため、それらを結ぶ並進対称性によって複合対称性 $S = \Theta T_D$ を定義でき、NdBi においては表面の磁気モーメントが強磁性的に揃っているため S 対称性を定義できない。これに伴い、GdBi の (001) では質量ゼロ、NdBi では有限質量のディラック電子が観測されたと解釈できる。側面のディラック電子状態については同様の議論で、NdBi と GdBi 両方で S 対称性が定義でき、質量ゼロのディラック電子状態が実現したと解釈できる。すなわち、NdBi と今回観測された GdBi の結果から、AF TI のディラック電子状態は複合対称性 S によって保護されていることを明らかにした。

4. BL-28A のマイクロ ARPES 装置の改良

ここでは、最近行った BL-28A のマイクロ ARPES 装置の改良について報告する。BL-28A では、微小スポットを生かして試料上を高速で走査しながら電子状態を観測する「空間マッピング」の機能が実装されている。空間マッピングを実装する上で重要となるのがその測定効率である。しかし単に走査の速度を上げるだけでは空間分解能が低下してしまい、目的の位置に移動した時に期待したバンド分散が得られないという事態につながる。これでは再度位置探しをする必要があり、長い時間をかけて空間マッピング

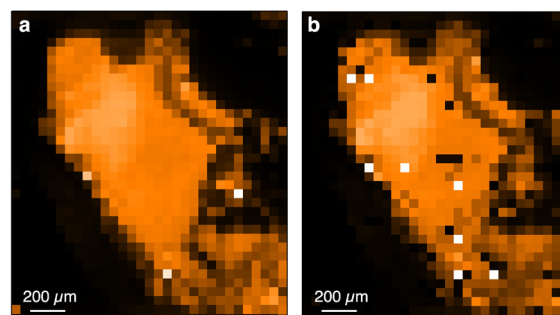


Figure 5 (a),(b) Comparison of photoelectron intensity map as a function of spatial position (x, y) between step-by-step and on-the-fly measurements, respectively.

をした意味がなくなってしまう。そこで我々は、試料位置制御ソフトウェアを改良することで、マッピング中の位置制御精度の向上を実現した。

GdBi の ARPES 測定ではこの空間マッピング方法 (step-by-step 法) を用いて反強磁性ドメインの探索を行ったが、測定に時間を要し、試料表面が劣化してしまうことが多々あった。そのため、より高効率なマッピング法が必要になると考え、on-the-fly 法に着目した。on-the-fly 法は試料表面上を連続で移動しながら光電子強度を取得し続ける手法である。その際、SPRING-8 での導入実績を参考に [8,9]。On-the-fly 測定では空間分解能が犠牲になってしまうが、その分測定にかかる時間は大幅に短縮できる。Figures 5a,b にそれぞれ Step by step で測定した空間マッピング結果と、On-the-fly 測定で得られた空間マッピング結果を示す。測定時間は Step-by-step で測定した結果が 58 分 48 秒、On-the-fly 測定では 9 分 41 秒で大幅に短縮された。Figures 5a,b で両者を比較すると、この範囲では空間分解能の悪化は目立たず、ほぼ同じ光電子強度マッピングの結果が得られている。そのため、まず大域的な強度分布や試料形状を把握する目的で On-the-fly 測定を短時間で行い、目星をつけて Step-by-step の局所空間マップを行う方法が効率的である。このように活用することで、局所電子状態を有する物質の ARPES 研究が効率化することが期待される。今後は図中で白飛びとして現れている、数値読み取りのエラー解消を目指してさらに改良を進める。

5. まとめ

本研究では Photon Factory BL-28A のマイクロ ARPES 装置を用いて反強磁性トポロジカル絶縁体 GdBi のディラック電子状態の観測を行った。微小スポットを用いて反強磁性ドメインを分離することで、上面と側面のディラック電子状態の観測に成功した。ディラック電子状態を詳細に解析し、両ドメインにおいて質量ゼロのディラック電子が存在していることを見出した。磁気構造と観測されたディラック電子質量を比較することで、複合対称性 $S = \Theta T_D$ がディラック電子質量を保護していると結論した。さらに磁気構造の異なる NdBi の結果をふまえ、複合対称性 $S = \Theta T_D$ が反強磁性トポロジカル絶縁体のディラック電子を保護す

る普遍的役割を果たしていると結論した。

また、BL-28A のマイクロ ARPES 装置のアップグレードについて報告した。空間マッピングの効率を飛躍的に向上することに成功した。

謝辞

本研究成果は、東北大学の壁谷典幸氏、中山耕輔氏、高根大地氏、組頭広志氏、高橋隆氏、木村憲彰氏、大阪大学の山内邦彦氏、小口多美夫氏、ケルン大学の Yongjian Wang 氏、安藤陽一氏、物質構造科学研究所の小澤健一氏、量子科学技術研究機構の北村未歩氏、堀場弘司氏の各氏との共同研究であり、この場を借りてお礼申し上げます。また、ARPES 測定においては東北大学の加藤剛臣氏、大隅拓海氏、近藤悠貴氏らに多大なサポートをいただきました。本研究は JST-CREST (No. JPMJCR18T1)、科学研究費補助金 (No. JP21H04435, JP24K00564, 23KJ0210), KEK-PF (No. 2021S2-001, 2024S2-001, 2022G652, 2024T001), Deutsche Forschungsgemeinschaft (277146847 - CRC 1238 Subproject A04), 東北大学 GP-Spin の支援を受けて行われました。

引用文献

- [1] R. S. K. Mong, A. M. Essin, and J. E. Moore, Phys. Rev. B **81**, 245209 (2010).
- [2] M. M. Otrokov, I. I. Klimovskikh, H. Bentmann, D. Estyunin, A. Zeugner, Z. S. Aliev, S. Gaß, A. U. B. Wolter, A. V. Koroleva, A. M. Shikin, M. Blanco-Rey, M. Hoffmann, I. P. Rusinov, A. Y. Vyazovskaya, S. V. Ereemeev, Y. M. Koroteev, V. M. Kuznetsov, F. Freyse, J. Sánchez-Barriga, I. R. Amiraslanov, M. B. Babanly, N. T. Mamedov, N. A. Abdullayev, V. N. Zverev, A. Alfonsov, V. Kataev, B. Büchner, E. F. Schwier, S. Kumar, A. Kimura, L. Petaccia, G. Di Santo, R. C. Vidal, S. Schatz, K. Kißner, M. Ünzelmann, C. H. Min, Simon Moser, T. R. F. Peixoto, F. Reinert, A. Ernst, P. M. Echenique, A. Isaeva, and E. V. Chulkov, Nature **576**, 416 (2019).
- [3] C. Liu, Y. Wang, H. Li, Y. Wu, Y. Li, J. Li, K. He, Y. Xu, J. Zhang, and Y. Wang, Nat. Mater. **19**, 522 (2020).
- [4] Y. Deng, Y. Yu, M. Z. Shi, Z. Guo, Z. Xu, J. Wang, X. H. Chen, and Y. Zhang, Science **367**, 895 (2020).
- [5] A. Honma, D. Takane, S. Souma, K. Yamauchi, Y. Wang, K. Nakayama, K. Sugawara, M. Kitamura, K. Horiba, H. Kumigashira, K. Tanaka, T. K. Kim, C. Cacho, T. Oguchi, T. Takahashi, Yoichi Ando, and T. Sato, Nat. Commun. **14**, 7396 (2023).
- [6] M. Kitamura, S. Souma, A. Honma, D. Wakabayashi, H. Tanaka, A. Toyoshima, K. Amemiya, T. Kawakami, K. Sugawara, K. Nakayama, K. Yoshimatsu, H. Kumigashira, T. Sato, and K. Horiba, Rev. Sci. Instrum. **93**, 033906 (2022).
- [7] A. Honma, N. Kabeya, S. Souma, Y. Wang, K. Yamauchi, K. Nakayama, D. Takane, K. Ozawa, M. Kitamura, K.

Horiba, H. Kumigashira, T. Oguchi, T. Takahashi, N. Kimura, Y. Ando, and T. Sato, Phys. Rev. B **110**, 115152 (2024).

- [8] 高木康多, 保井晃, SPring-8/SACLA 利用研究成果集 **10.1**, 95 (2022).
- [9] 鈴木基寛, 河村直己, 関澤央輝, 保井晃, 大沢仁志, 宇留賀朋哉, SPring-8/SACLA 利用研究成果集, **8.2**, 453 (2020).

(原稿受付日: 2025 年 9 月 9 日)

著者紹介

本間飛鳥 Asuka HONMA



東北大学 大学院理学研究科 博士後期課程
3 年, 日本学術振興会特別研究員 (DC1)
〒980-8578
宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 6-3
e-mail: a.honma@arpes.phys.tohoku.ac.jp

略歴: 2023 年東北大学大学院理学研究科博士前期課程修了, 同博士後期課程進学。

最近の研究: 角度分解光電子分光による反強磁性トポロジカル絶縁体の研究。

相馬清吾 Seigo SOUMA



東北大学材料科学高等研究所 准教授
〒980-8577
宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1
e-mail: seigo.soma.e2@tohoku.ac.jp

略歴: 2005 年東北大学大学院理学研究科物理学専攻博士後期課程終了, 2005 年日本学術振興会海外特別研究員, 2006 年東北大学原子大学院理学研究科助手, 2007 年東北大学原子分子材料科学高等研究機構助教, 2014 年東北大学材料科学高等研究機構准教授, 2017 年東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター准教授, 2022 年東北大学原子分子材料科学高等研究所准教授。博士 (理学)。

最近の研究: 光電子分光装置開発と電子スピン物性解明。

佐藤宇史 Takafumi SATO



東北大学材料科学高等研究所 教授
〒980-8577
宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1
e-mail: t-sato@arpes.phys.tohoku.ac.jp

略歴: 2002 年東北大学大学院理学研究科物理学専攻博士後期課程修了, 2002 年日本学術振興会特別研究員 (PD), 2002 年東北大学大学院理学研究科助手, 2007 年同助教, 2010 年同准教授, 2017 年同教授, 2019 年東北大学材料科学高等研究所教授。博士 (理学)。

最近の研究: トポロジカル物質の電子状態。